

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-223507

(43)Date of publication of application : 26.08.1997

(51)Int.Cl.

H01M 8/02  
H01M 8/04  
H01M 8/10

(21)Application number : 08-027527

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

(22)Date of filing : 15.02.1996

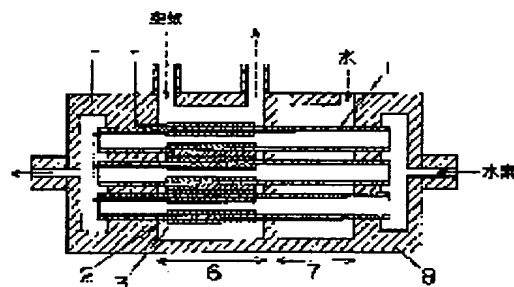
(72)Inventor : UCHIDA MAKOTO  
FUKUOKA HIROKO  
SUGAWARA YASUSHI  
EDA NOBUO

### (54) SOLID POLYMER FUEL CELL

#### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a fuel cell-whose structure can be simplified and on which size reduction can be attained by simplifying the constitution of a unit cell, and integrally forming a humidifying part and a power generation part.

**SOLUTION:** A unit cell is constituted in such as way that a negative electrode 2 is formed on an inside surface of hollow yarn 1 of solid polymer electrolyte, and a positive electrode 3 is formed on an outside surface, and fuel is supplied to the negative electrode side, and an oxidizing agent is supplied to the positive electrode side. Mutual electrodes formed on an outside surface and mutual electrodes formed on an inside surface in this unit cell are respectively connected in parallel to each other, and are formed as parallel connection cell groups, and the cell groups are also connected in series to each other. A solid polymer fuel cell constituted so that a part of the hollow yarn 1 of the polymer electrolyte is formed as a humidifying part 7 and the other part is formed as a power generation part 6 is formed. Therefore, a structure of the solid polymer fuel cell is simplified, and size reduction can be attained.



### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

10.01.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-223507

(43)公開日 平成9年(1997)8月26日

(51)Int.Cl. <sup>8</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 M	8/02		H 0 1 M 8/02	E
	8/04		8/04	P
	8/10		8/10	K

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 7 頁)

(21)出願番号	特願平8-27527	(71)出願人	000005821 松下電器産業株式会社 大阪府門真市大字門真1006番地
(22)出願日	平成8年(1996)2月15日	(72)発明者	内田 誠 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内
		(72)発明者	福岡 裕子 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内
		(72)発明者	菅原 靖 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内
		(74)代理人	弁理士 滝本 智之 (外1名)

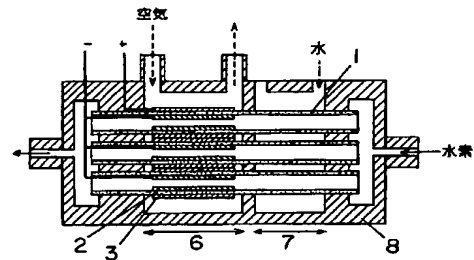
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 固体高分子型燃料電池

## (57)【要約】

【課題】 単位電池の構成を単純化し、さらに加湿部と発電部を一体化することによって、構造を簡素化し小型化を可能にした固体高分子型燃料電池を提供する。

【解決手段】 固体高分子電解質の中空系1の内面に負極2、外面に正極3を形成し、負極側に燃料を、正極側に酸化剤を供給してなる単位電池10を構成する。さらに、この単位電池における外面に形成した電極同士と内面に形成した電極同士をそれぞれ並列接続して並列接続電池群とし、さらに電池群を直列接続する。また、高分子電解質中空系1の一部を加湿部7とし、他の一部を発電部6とした構成の固体高分子型燃料電池とする。これらにより、固体高分子型燃料電池の構造が簡素化され、小型化が可能になる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】固体高分子電解質から成る中空系の内面あるいは外面に負極を、他方の面に正極を形成して発電部とし、上記中空系の負極を形成した面に燃料、正極を形成した面に酸化剤を供給する固体高分子型燃料電池。

【請求項 2】複数の中空系の外面に形成した電極同士と、内面に形成した電極同士をそれぞれ並列接続した請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池。

【請求項 3】中空系の各面に形成した正極と負極とを直列接続した請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池。

【請求項 4】中空系の内面に負極を形成し、外面に正極を形成した請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池。

【請求項 5】中空系の一部に発電部を形成し、他の一部を加湿部とした請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池。

【請求項 6】負極または正極の少なくともどちらか一方が触媒層とガス拡散層を交互に少なくとも 2 層積層した層状構造である請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池。

【請求項 7】ガス拡散層が触媒層よりも撥水性が強い構造とした請求項 6 記載の固体高分子型燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は燃料として純水素、



【0007】触媒は反応の活性点となり、電極層は上記反応の電子の伝導体であり、高分子電解質は水素イオンの伝導体となる。

【0008】ただし、一般的に用いられる高分子電解質は含水して初めて実用的なイオン透過性を持つ。従って、この高分子電解質を加湿する方法が広く検討されている。米国特許 5, 252, 410 号に代表されるように、上記単位電池 10 は図 6 に示すようなセパレータ板 11 とガスケット 12 を間に挟み直列に接続され、図 7 に示すような積層体 13 を形成しエンドプレート 14 で締め付けて一つの発電ユニットとなる。このユニットのマニホールド部 15 中に酸化剤としての酸素を、マニホールド部 16 に燃料としての水素を供給する。上記米国特許では燃料および酸化剤の加湿部は上記積層体の発電部とエンドプレートで一体に構成されている。この加湿部はイオン交換膜の一方の面に燃料または酸化剤を供給し他方に水を供給して、膜が水分だけを透過する性質を利用して上記燃料または酸化剤をそれぞれ加湿している。特開平 5 - 54900 号公報の加湿方法は、燃料または酸化剤ガスの供給通路内に加圧水の噴霧ノズルを有する動力噴霧器、あるいは極微小化した霧の生成水面を有する超音波加湿器を持つ構成とした。特開平 6 - 338338 号公報の加湿方法はセパレータ板と単位電池との間に多孔性の燃料配流板あるいは酸化剤配流板を設置し、配流板内部に水を供給して配流板の微細孔を介して加湿する構成とした。また、特開平 7 - 245116 号公報は積層電池のスタック内に中空系膜を用いた加湿装

またはメタノールや化石燃料からの改質水素などの還元剤を用い、空気や酸素を酸化剤とする固体高分子型燃料電池の構成に関するものである。

【0002】

05 【従来の技術】従来の固体高分子型燃料電池は電解質に固体高分子電解質であるイオン交換膜を用いており、その一般的な構成を図 5 に示す。従来のイオン交換膜 9 を用いた構成では上記イオン交換膜 9 の両面に正極 3 または負極 2 を層状に形成し、単位電池 10 はシート状の平面体の構成となる。この単位電池 10 を図 6 に示すようにセパレータ板 11 とガスケット 12 を間に挟みガスシールして積層する。

【0003】この燃料電池に水素を燃料として用いた場合、負極では触媒と高分子電解質の接触界面において

15 (化 1) の式に示す反応が起こる。

【0004】

【化 1】



【0005】酸素を酸化剤として用いた場合、正極では

20 (化 2) の式に示す反応が起こり水が生成される。

【0006】

【化 2】

置を設置して燃料電池をコンパクト化する内容を開示している。さらに、米国特許 5, 262, 250 号ではイオン交換膜内部に細いバスを通し、このバスに水を供給して加湿する構成としている。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら上記従来の固体高分子型燃料電池の構成では、図 6 に示すように各単位電池 10 を反応ガスの混合を防ぎ、かつ電気的に接続するための部材であるセパレータ板 11 が必要であるが、高分子電解質がそのイオン交換基であるスルホン基の性質により酸性を示すために上記セパレータ板 11 は耐酸性であり、かつ導電性が必要であるため、カーボン材料やチタン材料が用いられている。これらの材料は加工性が悪く高価であるため燃料電池本体のコストを高価にする課題の一つになっている。また、積層化するための部材として各部のガスシールのためにガスケット 12 が必要である。各単位電池 10 ごとに正極や負極の電極部、燃料や酸化剤のマニホールド部 15 あるいは 16 などをそれぞれ独立して分離、シールする必要がある、上記ガスケット 12 は複雑かつ精密な形状となる。そのためさらにコストを上げ組立を困難にする原因となる課題を有していた。

【0010】また、上記従来の固体高分子型燃料電池の加湿部の構成では、膜加湿を行った場合には単位電池を積層化する場合と同様にセパレータ板やガスケットの問題があり、噴霧装置や多孔質板、超音波加湿を用いた場合にはシステムが複雑になるのに加えて加圧装置や超音

波発振子などに要する動力源を燃料電池本体の出力から賄う必要があり、性能低下につながるという課題を有していた。

【0011】本発明はこのような従来の課題を解決するもので、単位電池の構成を単純化し、さらに加湿部と発電部を電池と一体化することによって、構造を簡素化し小型化を可能にした固体高分子型燃料電池を提供することを目的とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するために、本発明は固体高分子電解質より成る中空糸の内面あるいは外面に負極、他方の面に正極を形成し、中空糸の負極を形成した面に燃料、正極を形成した面に酸化剤を供給する固体高分子型燃料電池である。

【0013】また、本発明は固体高分子電解質よりなる中空糸の一部に発電部を形成し、他の一部を加湿部とした固体高分子型燃料電池である。

【0014】本発明によれば、単位電池の構成を単純化し、小型で性能の良い固体高分子型燃料電池とすることができる。

【0015】

【発明の実施の形態】本発明の請求項 1 に記載の固体高分子型燃料電池は、固体高分子電解質より成る中空糸の内面あるいは外面に負極を、他方の面に正極を形成し、中空糸の負極を形成した面に燃料、正極を形成した面に酸化剤を供給する構成である。この構成によれば、燃料が供給される部分と酸化剤が供給される部分とが中空糸によって完全に隔離されているため、特別なセパレータや高価で複雑な構造のガスケットを用いることなくガスシールすることが可能であり、ガスシール部の存在がないためガスが混合し性能を低下させることもない。

【0016】請求項 2 に記載の発明は、請求項 1 の中空糸の内面に形成した電極同士と、外面に形成した電極同士をそれぞれ束ねることにより並列に接続する構成であり、簡単に並列接続することが可能である。

【0017】請求項 3 に記載の発明は、請求項 1 の中空糸の各面に形成した負極と正極をそれぞれ直列接続する構成であり、特別なセパレータ構造を用いることなく容易に電池電圧を増加することが可能である。

【0018】請求項 5 に記載の発明は、請求項 1 の中空糸の一部に発電部を形成し、他の一部を加湿部とした構成であり、このことにより容易に加湿構造と燃料電池構造を一体化し燃料電池システム本体を小型化することができる。

【0019】請求項 6 に記載の発明は、請求項 1 の負極または正極の少なくとも一方を触媒層とガス拡散層を交互に少なくとも 2 層積層した層状構造であり、反応ガスの拡散能力が向上し、濃度分極が低下することにより電流密度が向上する。さらに、触媒層よりもガス拡散層の撥水性が強い構造とすることにより、反応ガスの拡散能

力はより向上する。

【0020】（実施の形態 1）図 1 に本発明の実施の形態 1 の燃料電池の一部を切り取り内部断面の斜視図を示す。

05 【0021】図 1 において 1 は固体高分子電解質よりなる中空糸であり、この高分子電解質中空糸 1 の内面に負極 2 を形成し、外面に正極 3 を形成する。負極 2 には負極端子 4 を、正極 3 には正極端子 5 をとり、上記負極 2 を形成した高分子電解質中空糸 1 の内面に燃料である水素を、また、正極 3 を形成した外面に酸化剤である空気を供給し、発電部とする。

【0022】（実施の形態 2）図 2 に本発明の実施の形態 2 の図 1 に示した燃料電池の単位電池を配列構成した一例の斜視図を示す。

15 【0023】図 2 において 1 4 個の単位電池の正極端子 4 と負極端子 5 をそれぞれ束ねて並列接続を行い、並列接続電池群を構成する。さらに、並列接続電池群を他の並列接続電池群と直列接続を行う。

【0024】（実施の形態 3）図 3 に本発明の実施の形態 3 の燃料電池の発電部 6 と加湿部 7 を備えた構成の一例の斜視図を示す。また図 4 に図 3 の電池をケーシングした電池の一例の断面図を示す。

【0025】図 3 と図 4 において高分子電解質中空糸 1 の一部に正極 3 と負極 2 を形成して発電部 6 とし、他の一部を加湿部 7 として構成する。発電部 6 の高分子電解質中空糸 1 の外面には酸化剤としての空気を供給し、加湿部 7 の高分子電解質中空糸 1 の外面には純水を供給する。高分子電解質中空糸 1 の内面には燃料としての水素が供給され、高分子電解質の純水のみを透過するという性質により高分子電解質中空糸 1 の内面を通過する水素を加湿部 7 で加湿し、加湿された水素が発電部 6 に供給される。

【0026】

【実施例】以下、実施例により本発明をさらに詳しく説明する。

【0027】（実施例 1）本発明の実施例による固体高分子型燃料電池の単位電池を図 1 に示す構成で作製した。高分子電解質中空糸 1 として旭硝子エンジニアリング株式会社製 SUNSEP-WTM を使い、この外径 0.5 mm、内径 0.35 mm、長さ 12 cm の中空糸を両端 1 cm をマス킹したのち、Pt の無電解メッキ浴に浸漬して高分子電解質中空糸 1 の内部および外部の表面に負極 2 および正極 3 となる触媒層を成形した。Pt の担持量は両極ともに膜の表面積あたり 0.5 mg/cm<sup>2</sup> とした。各電極には Ti 線を接続して集電した。

【0028】（実施例 2）実施例 1 の燃料電池をポリテトラフルオロエチレン (PTFE) あるいはポリテトラフルオロエチレンとポリヘキサフルオロプロピレンの共重合体 (FEP) などのディスパージョンに浸漬して触媒層の表面に撥水性のガス拡散層を成形した他は全て実

施例 1 と同様の構成として本発明の固体高分子型燃料電池を作製した。

【0029】（実施例 3）図 2 に示すように実施例 2 で作製した 14 個の単位電池の正極端子 5 と負極端子 4 をそれぞれ束ねて並列接続を行い並列接続電池群を構成した。さらに並列接続電池群を他の 9 個の並列接続電池群と直列に接続した。

【0030】（実施例 4）実施例 2 と同様の方法で、全長 17 cm の高分子電解質中空系において両端 1 cm および加湿部とする 5 cm をマスキングした後、残り 10 cm に実施例 2 と同様の方法で発電部を形成し、10 cm の発電部と 5 cm の加湿部を有する単位電池を作製した。この単位電池を実施例 3 と同様に並列接続した様子を図 3 に示す。さらに、並列接続した電池をケース 8 によりケーシングした。図 4 にケーシングした電池の断面図を示す。図中、高分子電解質中空系 1 の内面に水素を供給し、外面の加湿部 7 では純水を注入し、発電部 6 では空気を供給する。このような構成とすることにより、水素は加湿部 7 で高分子電解質を通過した純水により加湿され、加湿した状態で発電部 6 に供給される。

【0031】（比較例 1）Pt を担持した炭素微粉末と高分子電解質のアルコール溶液（アルドリッチ社製）を混

合してペースト状にし、導電性カーボンペーパーに塗布して電極とした。白金触媒量は両極とも電極面積当たりの白金重量で  $0.5 \text{ mg/cm}^2$  とした。高分子電解質の添加量は電極面積当たり  $1.0 \text{ mg/cm}^2$  とした。これらの電極とイオン交換膜とを  $120 \sim 150^\circ\text{C}$ 、 $20 \sim 200 \text{ kg/cm}^2$  でホットプレスして負極とイオン交換膜と正極との接合を同時に行った。負極および正極は同じ種類の電極とした。これらの接合体を用いて、図 5 に示した固体高分子型燃料電池の単位電池を作製した。図中 2 は負極、3 は正極であり、9 のイオン交換膜は米国デュボン社製の Nafion 115 を用いた。電極の面積は  $10 \text{ cm}^2$  とした。

【0032】（比較例 2）比較例 1 の単位電池を図 7 に示すように 10 セル積層した積層電池を比較の電池として作製した。

【0033】以上の本発明の実施例 1～3 および比較例 1 の単電池の負極側に  $60^\circ\text{C}$  の温度で加湿した水素ガスを、正極側に  $60^\circ\text{C}$  の温度で加湿した空気をそれぞれ供給して放電試験を行った。また、実施例 4 では加湿しない水素および空気を供給した。

【0034】

【表 1】

	開回路電圧 (V)	単位電池電圧 0.5 V における電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	単位体積あたりの出力 (W/cm <sup>3</sup> )
実施例 1	1.01	610	-
実施例 2	1.00	650	-
実施例 3	10.1	630	-
実施例 4	1.00	635	0.71
比較例 1	0.95	520	-
比較例 2	9.20	500	0.078

【0035】本発明の実施例および比較例に用いた燃料電池を放電した結果を（表 1）に示した。比較例 1 の単位電池が開回路電圧 0.95 V であり、単位電池の電圧が 0.5 V のときの電流密度は  $520 \text{ mA/cm}^2$  であったのに対して実施例 1 の開回路電圧は 1.01 V を示し、単位電池の電圧が 0.5 V のときの電流密度は  $610 \text{ mA/cm}^2$  であった。本実施例の電流密度の計算は

中空系の外側の電極の面積をもとに計算した。実施例の単位電池 1 本あたりの反応面積は約  $1.6 \text{ cm}^2$  である。

【0036】この結果、比較例ではガスケットのガスシール不良によって水素と空気のわずかな混合が生じ開回路電圧が 1 V 以下に低下したと考えられる。一方、実施例では高分子電解質中空系によって水素と空気が完全に

分離され、ガスケット部を持つ必要がなく、シールの不良が生じないために 1 V 以上の開回路電圧が得られ、水素および空気の拡散経路が短くなり電流密度も増加したと考えられる。

【0037】実施例 2 の単位電池は実施例 1 の電流密度よりも大きい  $650 \text{ mA/cm}^2$  の電流密度が得られた。電極の触媒層の表面に撥水化した拡散層を付加したので反応ガスの拡散能力が向上し濃度分極が低下して電流密度が向上したと考えられる。

【0038】実施例 3 では単位電池を並列および直列接続した。総開回路電圧は 10.1 V、単位電池の電圧が 0.5 V のときの電流密度は  $630 \text{ mA/cm}^2$  であり、143 W の出力が得られた。以上のように複数の電池の接続による性能低下はわずかであった。

【0039】実施例 4 は加湿を同じ高分子電解質中空系を用いて行った構成であるが、このときの開回路電圧は 1.00 V であり、単位電池の電圧が 0.5 V のときの電流密度は  $635 \text{ mA/cm}^2$  であった。この加湿部一体型の電池の総体積は  $20 \text{ cm}^3$ （長さ 20 cm、高さ 1 cm、幅 1 cm）であり、14.2 W の出力が得られた。単位体積あたりの出力は  $0.71 \text{ W/cm}^3$  であった。一方、比較例 2 の積層電池の体積は  $320 \text{ cm}^3$ （長さ 8 cm、高さ 5 cm、幅 8 cm）であり、25 W の出力が得られた。単位体積あたりの出力は  $0.078 \text{ W/cm}^3$  であった。この結果より、単位体積あたりの性能を比較すると本発明の実施例 4 の構成では加湿部を一体化しているのにもかかわらず、加湿部を持たない比較例 2 の従来型の積層電池の 9 倍の出力が得られた。従って、同じ出力を得る場合には 9 分の 1 の顕著な小型化が可能であると言える。

【0040】ただし、実施例および比較例の構成は充分に最適化した構成ではないため種々の改良を加えることにより上記実施例および比較例の数値に差異が生じることが予想されるが、実施例の構成の優位性は十分に保証できる。

【0041】なお、本実施例では高分子電解質中空系の内面に負極を形成し、外面に正極を形成した構成としたが、正負極の設定はこの限りではなく、内面に正極を形成し、外面に負極を形成してもよい。

【0042】また、本発明の高分子電解質中空系や触媒などの素材および製法は本実施例に限定されるものではなく、同様の機能を有するものであれば他の素材および製法を用いることができる。

【0043】さらに、本実施例では、固体高分子型燃料電池の一例として水素-空気燃料電池を取り上げたが、メタノール、天然ガスやナフサ、プロパンなどを燃料とする改質水素を用いた燃料電池、また、酸化剤として酸素を用いた燃料電池、さらにはメタノールなどの液体燃

料を直接反応させる燃料電池など他の固体高分子型燃料電池に適用することも可能である。

【0044】

【発明の効果】以上のように本発明の構成によれば、燃料が供給される部分と酸化剤が供給される部分が固体高分子電解質から成る中空系によって完全に隔離されているため、特別なガスケットの構造を用いることなくガスシールが可能となる。また、これらの単位電池同士を同じ側の電極が接するように束ねることによって簡単に並列接続が可能となり、それらの並列接続電池を直列接続して特別なセパレータ構造を用いることなく容易に電池電圧を増加することができる。さらに、中空系の一部を発電部とし、他の一部を加湿部として構成することによって容易に加湿構造と燃料電池構造を一体化することができ、構造を簡素化し小型化を可能にした固体高分子型燃料電池を提供できる。

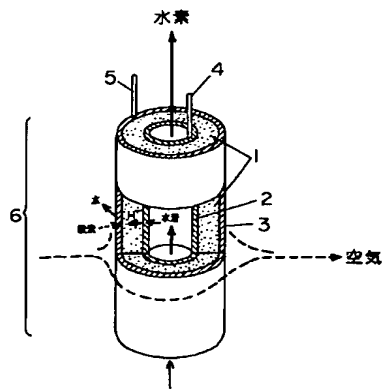
【図面の簡単な説明】

- 【図 1】本発明の実施例による燃料電池の一部を切り取り内部断面を示す斜視図
- 【図 2】本発明の実施例による燃料電池の配列構成概念の一例を示す斜視図
- 【図 3】本発明の実施例による燃料電池の構成の一例を示す斜視図
- 【図 4】本発明の実施例による燃料電池の構成の一例を示す断面図
- 【図 5】従来の固体高分子電解質膜を用いた燃料電池の単電池の断面図
- 【図 6】従来の固体高分子電解質膜を用いた燃料電池の積層体の単電池の断面図
- 【図 7】従来の固体高分子電解質膜を用いた燃料電池の積層体の組立斜視図

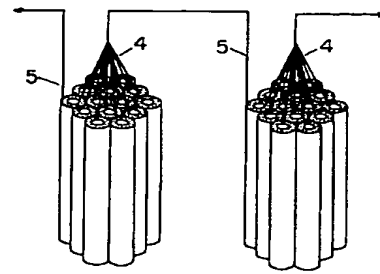
【符号の説明】

- |    |             |
|----|-------------|
| 1  | 固体高分子電解質中空系 |
| 2  | 負極          |
| 3  | 正極          |
| 4  | 負極端子        |
| 5  | 正極端子        |
| 6  | 発電部         |
| 7  | 加湿部         |
| 8  | ケース         |
| 9  | イオン交換膜      |
| 10 | 単位電池        |
| 11 | セパレータ板      |
| 12 | ガスケット       |
| 13 | 積層体         |
| 14 | エンドプレート     |
| 15 | マニホールド部     |
| 16 | マニホールド部     |

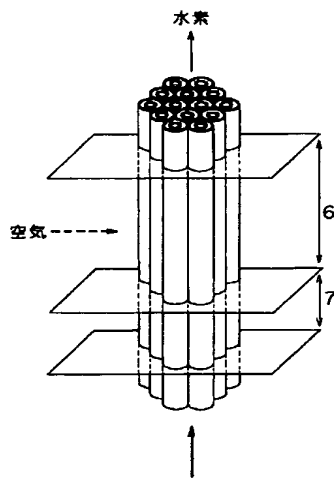
【図 1】



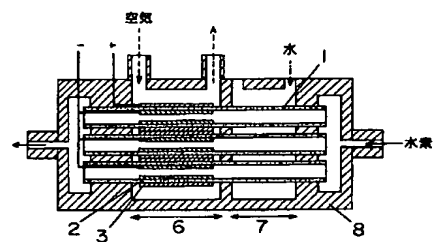
【図 2】



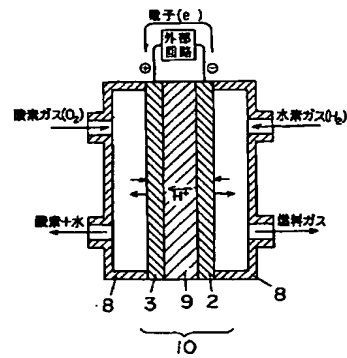
【図 3】



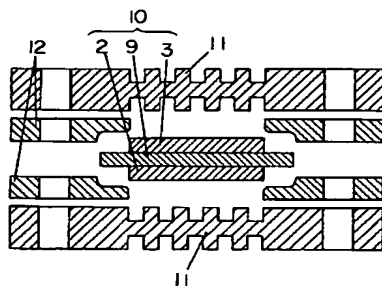
【図 4】



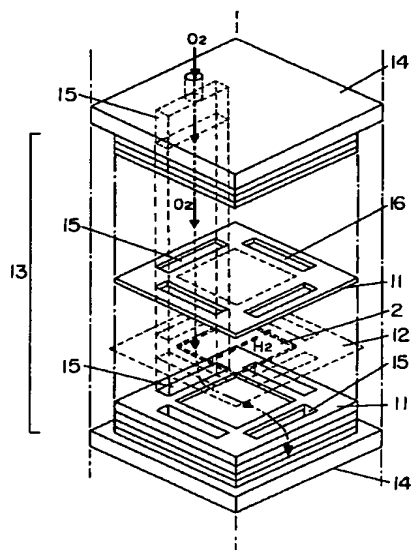
【図 5】



【図 6】



【図 7】



フロントページの続き

(72)発明者 江田 信夫  
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器  
産業株式会社内

30